DE 19838814 A 1

(5) Int. Cl.6 H 01 M 8/10 H 01 M 8/02



PATENT: UND MARKENAMT (21) Aktenzeichen: 198 38 814.4 (2) Anmeldetag: 26. 8.98

(4) Offenlegungstag: 4. 3.99 H.01:M 4/86

① Unionspriorität:

231997/97

28. 08. 97

(7) Anmelder:

Fuji Electric Co., Ltd., Kawasaki, Kanagawa, JP

(74) Vertreter:

Blumbach, Kramer & Rartner GbR, 81245 Munchen

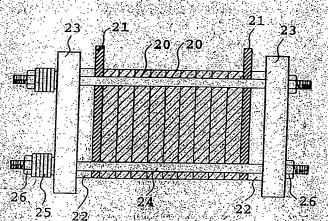
(12) Erfinder:

Takano, Hiroshi, Kawasaki, Kanagawa, JP

# Die folgenden Angaben sind den vom Anmelder eingereichten Unterlägen entnommen

- (A) Brennstoffzelle mit einem festen Polymer-Elektrolyten
- Die Erfindung betrifft eine Brennstoffzelle mit einem festen Polymer-Elektrolyten, der aus einem Stapel aus einer Mehrzahl einzelner Zellen besteht. Die einzelne Zelle schließt eine Anoden-Katalysatorscheiht 1 und eine Kathoden-Katalysatorschicht 2 ein, die an gegenüberliegen de Oberflächen eines Films 3 eines festen Polymer Elektrolyten gebunden sind, Diffusionsschichten 4, 4, die auf den Außenflächen der resultierenden Struktur angeordnet sind, und Separatoren 7a, 7b; die mit Gasrillen 6a, 6b versehen sind und die Diffusionsschichten einrahmer Eine anodenseitige Diffusionsschicht 4. der ein Mischflüid aus Wasserstoff und Wasser zugeleitet wird, ist eine was serabstoßende Diffusionsschicht 4, die aus einem was serabstoßenden, gasdurchlassigen, leitfähigen Material besteht, das Gasdurchlassigkeit, Leitfahigkeit und Abstoßungsvermögen für Wasser aufweist: Mit diesem Aufbau wird die tolerierbare Stromungsrate von Wasser erhöht das zusammen mit dem Reaktionsgas zugeführt wird und die Brennstoffzelle kann stabil mit einer einfachen

Steuerung der Strömungsrate betrieben werden.



## Beschreibung

Die vorliegende Erfindung betrifft eine Brennstoffzelle mit einem festen Polymer-Elektrolyten, in der ein fester Polymerfilm als Elektrolyt-Schicht verwendet wird und so elektrische Energie im Rahmen einer elektrochemischen Reaktion erhalten wird. Noch spezieller betrifft die vorliegende Erfindung die Struktur einer Einzelzelle des Typs, bei dem Wasser dem Reaktionsgas zugesetzt wird, so daß ein Gasstrom mit einer Substanzmischung zugeführt wird.

Fig. 2 ist eine schematische Schnittansicht, die die Struktur einer Einzelzelle einer Brennstoffzelle mit einem festen Polymer-Elektrolyten gemäß dem Stand der Technik zeigt. Gemäß Fig. 2 werden eine Anoden-Katalysatorschicht 1 und eine Kathoden-Katalysatorschicht 2 fest an die beiden 15 jeweiligen Hauptoberflächen eines festen Polymer-Elektrolyt-Dünnfilms 3 gebunden und so ein Verbundstoff aus dem Film und den Elektroden gebildet. Auf dessen Außenflächen sind Kohlepapiere als gasdurchlässige, leitfähige Schichten angeordnet, die sowohl Gasdurchlässigkeit als auch Leitfä- 20 higkeit für elektrischen Strom aufweisen und so Diffusionsschichten 5 bilden, die es ermöglichen, daß das Reaktionsgas durch sie hindurchtritt, so daß das Reaktionsgas an die Katalysatorschichten 1 und 2 gelangen kann, die gleichzeitig eine Stromsammel-Funktion haben. Außerdem sind an 25 beiden Außenflächen der Diffusionsschichten 5 gasundurchlässige Separatoren 7a und 7b angeordnet, die jeweils mit Rillen 6a und 6b für das Gas versehen sind, um das Reaktionsgas von außen zur Elektrode hinzuleiten und einen Überschuß an Gas abzuführen. Der resultierende Körper ist wei- 30 ter sandwichartig mit Stromkollektor-Platten 8 und weiter mit Endplatten 9 versehen, wodurch der Aufbau einer Einzelzelle vervollständigt wird.

Wenn in dem oben beschriebenen Aufbau Wasserstoff als Brennstoffgas den anodenseitigen Gasstrom-Rillen 6a zuge- 35 leitet wird und Sauerstoff oder Luft als Oxidationsmittel den kathodenseitigen Gasstrom-Rillen 6b zugeleitet wird, wird an den Grenzflächen zwischen den Katalysatorschichten der jeweiligen Elektroden und den festen Polymer-Elektrolyt-Filmen eine dreiphasige Grenzfläche ausgebildet, und es 40 laufen die folgenden elektrochemischen Reaktionen ab:

Anode:

 $H_2 \rightarrow 2 H^+ + 2 e^-$ 

Kathode:

 $2 H^+ + (1/2) O_2 + 2 e^- \rightarrow H_2O$ 

Mit anderen Worten: Wasserstoff und Sauerstoff reagieren miteinander unter Bildung von Wasser, und gleichzeitig wird elektrische Energie in einem externen Kreislauf erhalten. Um den Filmwiderstand zu verringern und die Wirksamkeit der Stromerzeugung auf einem hohen Wert zu hal- 55 ten, wird die Brennstoffzelle mit dem festen Polymer-Elektrolyten normalerweise bei einer Temperatur von 50 bis 100°C betrieben. Da außerdem die Ausgangsspannung, die von einer Einheit einer Einzelzelle erhalten wird, einen kleinen Wert aufweist und 1 V oder weniger ist, wird eine Mehr- 60 zahl von Einzelzellen, die zu einem Stapel aufgeschichtet werden, elektrisch in Reihe verbunden, bevor sie verwendet werden können.

Der spezifische Widerstand des festen Polymer Elektrorigt, wenn man ihn mit Wasser sättigt. Der Film dient als für Protonen leitfähiger Elektrolyt-Film. Daher ist es erforderlich, daß der Film eine aus reichende Menge Wasser enthält,

um die Effizienz der Stromerzeugung der Brennstoffzelle mit einem festen Polymer-Elektrolyten auf einem hohen Wert zu halten. Aus diesem Grund wurde bisher ein Verfahren eingesetzt, bei dem dem Reaktionsgas mittels eines Befeuchters oder dergleichen Wasser zugesetzt wird und die Zelle durch Kühlwasser auf eine passende Temperatur gekühlt wird, um den Elektrolyt-Film in einem beseuchteten Zustand zu halten. Alternativ dazu wird ein Verfahren angewandt, bei dem das Reaktionsgas mit Wasser gemischt wird, ohne einen Befeuchter zu verwenden, und als Mischfluid zugeleitet wird, wodurch der Elektrolyt-Film in einem feuchten Zustand gehalten wird. Dies ist beispielsweise beschrieben in den Beschreibungen und den Figuren der japanischen

offengelegten Patentanmeldung Nr. 7-220,746 und der japa-

nischen offengelegten Patentanmeldung Nr. 10-106,600. Fig. 3 ist ein schematisches Diagramin, das die Struktur eines Mischfluid-Zuführsystems zeigt, wie es in einer Figur der japanischen offengelegten Patentanmeldung Nr. 10-106,600 veranschaulicht ist. Gemäß Fig. 3 schließt das System Brennstoffgas- und Luft-Zuleitungsrohre, die eine Brennstoffgas-Zuleitungseinheit 12 und eine Luft-Zuleitungseinheit 13 mit einer Brennstoffzellen-Haupteinheit 11 verbinden, Leitungen, die mit den Zuleitungsrohren zur Einspeisung von reinem Wasser aus einer Reinwasser-Einspeisungseinheit 14 verbunden sind, eine Heizeinheit 15 zum Aufheizen des reinen Wassers auf eine geeignete Temperatur und elektromagnetische Ventile 16A und 16B, die durch eine Steuereinheit 17 gesteuert werden, zur Einstellung der Strömungsgeschwindigkeit des reinen Wassers auf einen geeigneten Wert, so daß das Brennstoffgas und die Luft jeweils mit reinem Wasser gemischt werden, bevor sie der Brennstoffzellen-Haupteinheit 11 zugeleitet werden, ein.

Wie oben beschrieben, wird in der Brennstoffzelle mit einem festen Polymer-Elektrolyten gemäß dem Stand der Technik eine Sättigung des festen Polymer-Elektrolyt-Films mit Wasser beispielsweise durch Befeuchtung des Reaktionsgases, indem man das Gas durch einen Befeuchter oder dergleichen leitet, bevor es dem Brennstoffzellen-Stapel zugeleitet wird, oder durch Zuleiten eines Mischfluids aus Reaktionsgas und Wasser erreicht.

Jedoch weist das erstgenannte Verfahren, in dem ein Befeuchter oder dergleichen verwendet wird, ein Problem dahingehend auf, daß die Zahl zusätzlicher peripherer Einheiten erhöht wird, was zu einem großen und komplexen System führt. Andererseits weist zwar das letztgenannte Verfahren der Zuleitung eines Mischfluids aus Reaktionsgas und Wasser den Vorteil auf, daß das System relativ vereinfacht werden kann; wenn jedoch die Menge an zugeleitetem Wasser zu gering ist, trocknet der feste Polymer-Elektrolyt-Film aus, und die gewünschten charakteristischen Eigenschaften werden nicht erhalten. Wenn alternativ dazu die Menge an zugeleitetem Wasser zu groß ist, werden die Diffusionsschichten und Katalysatorschichten mit Wasser befeuchtet, was deren Diffusionsvermögen für das Reaktionsgas erniedrigt. Dies führt zu verschlechterten charakteristischen Zellen-Eigenschaften. Daher ist es bei dem Ziel, eine hohe und stabile Leistung der Zelle zu erhalten, erforderlich, daß die Menge an zugeleitetem Wasser exakt auf einen Wert in einem schmalen Bereich eingestellt wird, und es ist deswegen, weil die tolerierbare Menge an zugeleitetem Wasser sehr klein ist, eine präzise Steuerung zur gleichmäßigen Zuführ von Wasser zu den jeweiligen Zellen erforderlich, aus denen der Stapel besteht. Daher besteht bei der Anwendung dieses Verfahrens das Problem, daß eine fortschrittliche lyt-Films als den Elektrolyten tragende Schicht wird ernied- 65 Steuerung erforderlich ist, was zu einer Erhöhung der Kosten führt.

Es ist daher eine Aufgabe der vorliegenden Erfindung, eine Brennstoffzelle mit einem testen Polymer-Elektrolyten

zu schaffen, die die Probleme löst, die mit dem Stand der Technik verbunden sind, wie er oben beschrieben wurde und die den Bereich einer tolerierbaren Menge an Wasser, das dem Reaktionsgas zuzuführen ist, durch einen einfachen Aufbau erhöht und die in stabiler Weise ohne Verschlechterung der charakteristischen Zellen-Eigenschaften selbst dann betrieben werden kann, wenn die Strömungsgeschwindigkeit des Wassers erhöht wird:

In Übereinstimmung mit der vorliegenden Erfindung, die die obige Aufgabe löst, wird bereitgestellt: eine Brennstoff- 10 zelle mit einem festen Polymer-Elektrolyten, die einen Stapel von einzelnen Zellen umfaßt, wobei jede einzelne Zelle umfaßt:

- einen Film aus einem festen Polymer-Elektrolyten. 15 der Hauptoberflächen aufweist;
- eine Anoden-Katalysatorschicht und eine Kathoden-Katalysatorschicht, die an die jeweiligen Hauptoberflächen des Films eines festen Polymer-Elektrolyten gebunden sind und so eine Anode bzw. eine Kathode aus- 20 bilden;
- für Gas durchlässige und leitfähige Diffusions schichten, die auf den jeweiligen Außenflächen der Katalysatorschichten angeordnet sind, die an die Hauptoberflächen des Films aus einem festen Polymer-Elektrolyten gebunden sind;
- einen ersten und einen zweiten für Gas undurchlässien Separator, die auf den jeweiligen Außenflächen der Diffusionsschichten angeordnet sind, wobei der erste zweiten Gasströmungsgängen versehen sind,
- wobei der erste Gasströmungsgang, der auf der Seite der Anode vorgesehen ist, dafür vorgesehen ist, daß darin ein Brennstoffgas strömt, und der zweite Gasströmungsgang, der auf der Seite der Kathode vorgesehen 35 ist, dafür vorgesehen ist, daß darin ein Oxidationsmittelgas strömt, so daß elektrische Energie durch eine elektrochemische Reaktion gebildet wird, wobei wenigstens eines der Gase Brennstoffgas und Oxidationsmittelgas als Mischfluid mit Wasser in dem jeweiligen, 40 Gasströmungsgang strömen; und
- worm wenigstens eine der gasdurchlässigen und leitfähigen Diffusionsschichten ein wasserabstoßendes, für Gas durchlässiges, leitfähiges Material umfaßt, das Gasdurchlassigkeit, Leitfähigkeit und Abstoßungsver- 45 mögen für Wasser aufweist.

Im Zusammenhang mit der vorliegenden Erfindung kann wenigstens eine Diffusionsschicht, die ein wasserabstoßendes, für Gas durchlässiges, leitfähiges Material umfaßt, das 50 Gasdurchlässigkeit, Leitfähigkeit und Abstoßungsvermögen für Wasser aufweist, eine Schicht sein, die zu dem Gasströmungsgang zeigt, in dem das Mischfluid strömt.

Die Diffusionsschicht, die zu dem Gasströmungsgang zeigt, in dem das Mischfluid strömt, kann eine erste Diffusi- 55 onsschicht umfassen, die ein wasserabstoßendes, für Gas durchlassiges, leitfahiges Material umfaßt, das Gasdurchlassigkeit, Leitfähigkeit und Abstoßungsvermögen für Wasser aufweist, und eine zweite Diffusionsschicht umfassen, die ein gasdurchlässiges, leitfähiges Material umfaßt, das eine 60 höhere Gasdurchlässigkeit als die erste Diffusionsschicht und Leitfähigkeit aufweist, wobei die erste Diffusionsschicht dem Gasströmungsgang benächbart angeordnet ist, in dem das Mischfluid strömt.

Die wenigstens eine Diffusionsschicht; die ein wasserab- 65 stoßendes, gasdurchlässiges, leitfähiges Material umfaßt, das Gasdurchlässigkeit, Leitfähigkeit und Abstoßungsvermögen für Wasser aufweist, kann eine Schicht sein, die dein

Gasströmungsgang zugewandt angeordnet ist, in dem das Gas alleine strömt

Die Diffusionsschicht, die dem Gasströmungsgang zugewandt ist, in dem das Gas alleine stromt, umfaßt eine erste Diffusionsschicht, die ein wasserabstoßendes, gasdurchlässiges, leitfähiges Material umfaßt, das Gasdurchlässigkeit. Leitfähigkeit und Abstoßungsvermögen für Wasser aufweist, und eine zweite Diffusionsschicht, die ein gasdurchlassiges, leitfahiges Material aufweist, das eine höhere Gasdurchlassigkeit als die erste Diffusionsschicht und Leitfahigkeit aufweist, wobei die erste Diffusionsschicht auf einer Seite der Katalysatorschicht angeordnet ist.

Das wasserabstoßende, gasdurchlässige, leitfahige Material kann eine Polytetrafluorethylen-Faserschicht mit darin dispergiertem Kohlenstoff-Pulver umfassen.

Das wasserabstoßende, gasdurchlässige, leitfahige Material kann ein Material umfassen, das aus der Gruppe gewählt ist die aus einer Carbon-Faserschicht, die mit Polytetrafluorethylen behandelt wurde, und einem porösen Kohlenstoff-Material besteht, das mit Polytetrafluorethylen behandelt

Die obigen Aufgaben sowie weitere Aufgaben, Wirkungen, Merkmale und Vorteile der vorliegenden Erfindung werden aus der folgenden Beschreibung der Ausführungsformen der Erfindung noch mehr offenbar, zusammengenommen mit den beigefügten Figuren. Es zeigen:

Fig. 1 eine schematische Schnittansicht, die die Struktur eines Brennstoffzellen-Stapels zeigt, der in eine Brennstoffzellen-Haupteinheit einer Brennstoffzelle mit einem festen Separator und der zweite Separator mit ersten und 30 Polymer-Elektrolyten gemäß der vorliegenden Erfindung eingeschlossen ist;

Fig. 2'eine schematische Schnittansicht, die die Struktur einer einzelnen Zelle einer Brennstoffzelle mit einem festen Polymer-Elektrolyten gemäß dem Stand der Technik zeigt;

Fig. 3 ein Blockdiagramin, das ein Zuleitungssystem zum Zuleiten eines Mischfluids aus Reaktionsgas und Wasser veranschaulicht, wie es in einer Brennstoffzelle mit einem festen Polymer-Elektrolyten gemaß dem Stand der Technik verwendet wurde;

Fig. 4 eine schematische Schnittansicht, die die Struktur einer einzelnen Zelle gemaß einer ersten Ausführungsform der vorliegenden Erfindung zeigt;

Fig. 5-eine Graphik, die charakteristische Eigenschaften einer einzelnen Zelle gemäß der ersten Ausführungsform der vorliegenden Erfindung im Vergleich mit denjenigen des Standes der Technik veranschaulicht;

Fig. 6 eine schematische Schnittansicht, die eine Struktur einer einzelnen Zelle gemäß einer zweiten Ausführungsform/der vorliegenden Erfindung zeigt;

Fig. 7 eine schematische Schnittansicht, die eine Struktur einer einzelnen Zelle gemäß einer dritten Ausführungsformder vorliegenden Erfindung zeigt;

Fig. 8 eine schematische Schnittansicht, die eine Struktur einer einzelnen Zelle gemäß einer vierten Ausführungsform der vorliegenden Erfindung zeigt;

Eig. 9 eine schematische Schnittansicht, die eine Struktur einer einzelnen Zelle gemäß einer fünften Ausführungsform der vorliegenden Erfindung zeigt;

Fig. 10 eine schematische Schnittansicht, die eine Struktur einer einzelnen Zelle gemäß einer sechsten Ausführungsform der vorliegenden Erfindung zeigt;

Fig. 11 eine schematische Schnittansicht, die eine Struktur einer einzelnen Zelle gemäß einer siebten Ausführungsform der vorliegenden Erfindung zeigt;

Fig. 12 eine schematische Schniuansicht, die eine Struktur einer einzelnen Zelle gemäß einer achten Ausführungsform der vorliegenden Erfindung zeigt,

Fig. 13 eine schematische Schnittansicht, die eine Struk-

tur einer einzelnen Zelle gemäß einer neunten Ausführungsform der vorliegenden Erfindung zeigt;

Fig. 14 eine schematische Schnittansicht, die eine Struktur einer einzelnen Zelle gemäß einer zehnten Ausführungsform der vorliegenden Erfindung zeigt.

Die Erfindung wird nachfolgend unter Bezugnahme auf die Figuren im einzelnen beschrieben.

Fig. 1 ist eine schematische Schnittansicht, die ein Beispiel des Aufbaus eines Brennstoffzellen-Stapels zeigt, der in eine Brennstoffzellen-Haupteinheit der Brennstoffzelle 10 mit einem festen Polymer-Elektrolyten gemäß der vorliegenden Erfindung eingeschlossen ist. Gemäß Fig. 1 ist eine Mehrzahl von einzelnen Zellen 20 in einem Stapel angeordnet. Stromkollektor-Platten 21 sind an beiden Enden des Stapels und auf den Außenflächen der resultierenden Struktur angeordnet. Isolationsplatten 22 zur elektrischen und thermischen Isolation sind angeördnet, werden zwischen Spannplatten 23 geklammert gehalten und durch Befestigungsstäbe 24, kegelförmige Tellerfedern 25 und Befestigungsmuttern 26 zusammengedrückt.

Die einzelnen Zellen 20, aus denen die Brennstoffzelle mit festem Polymer-Elektrolyten gemäß der vorliegenden Erfindung besteht, haben denselben Aufbau wie Brennstoffzellen mit Polymer-Elektrolyten gemäß dem Stand der Technik, wie sie in Fig. 2 gezeigt sind, mit Ausnahme des 25 Aufbaus der Diffusionsschichten, und weisen einzigartige Diffusionsschichten auf, die von denen des Standes der Technik verschieden sind. Speziell sind - wie beispielsweise in den Fig. 2 und 4 gezeigt - eine Anoden-Katalysatorschicht 1 und eine Kathoden-Katalysatorschicht 2 eng an die 30 jeweiligen Hauptflächen eines Films 3 aus einem festen Polymer-Elektrolyten gebunden. Auf den jeweiligen Außenflächen der resultierenden Struktur sind der Reihe nach für Gas durchlässige und leitfähige Diffusionsschichten (4, 4) und anschließend undurchlässige Separatoren 7a und 7b angeordnet, die mit Gasrillen 6a bzw. 6b versehen sind, die als Gasströmungsgänge dienen, wodurch eine einzelne Zelle gebildet wird. Eine Mehrzahl derartiger einzelner Zellen ist unter Bildung eines Stapels gestapelt. Ein Brennstoffgas strömt in den Gasströmungsgang 6a, der in dem Separator 40 7a auf der Anodenseite jeder einzelnen Zelle vorgesehen ist, und ein Oxidationsmittelgas strömt in den Gasströmungsgang 6b, der in dem Separator 7b auf der Kathodenseite vorgesehen ist. Dadurch wird es möglich, daß eine elektrochemische Reaktion unter Erzeugung elektrischer Energie ab- 45 läuft. In diesem Fall strömt ein Mischfluid aus wenigstens einem der Gase Brennstoffgas und Oxidationsmittelgas und Wasser in den Gasströmungsgang. Im Rahmen der vorliegenden Erfindung ist eine Diffusionsschicht 4, die dem Gasströmungsgang zum Strömen eines derartigen Mischfluids zugewandt ist, aus einem wasserabstoßenden, für Gas durchlässigen, leitfähigen Material hergestellt, das Gasdurchlässigkeit, Leitfähigkeit und Abstoßungsvermögen für Wasser aufweist.

Mit anderen Worten: Wie in den Fig. 4, 8, 9, 11, 12 und 13 55 gezeigt, sind die wasserabstoßenden Diffusionsschichten 4, 4 den Gasströmungsgängen 6a und 6b zugewandt angeordnet, die in den Separatoren 7a und 7b auf der Anodenseite und der Kathodenseite vorgesehen sind. Alternativ dazu ist – wie in den Fig. 6 und 7 gezeigt – die wasserabstoßende 60 Schicht 4 den Gasströmungsgängen 6a zugewandt angeordnet, die in dem Separator 7a auf der Anodenseite der einzelnen Zelle vorgesehen sind. Alternativ dazu ist- wie in den Fig. 10 und 14 gezeigt – die wasserabstoßende Schicht 4 den Gasströmungsgängen 6b zugewandt angeordnet, die in dem 65 Separator 7b auf der Kathodenseite vorgesehen sind.

Wie oben beschrieben, tritt dann, wenn die Diffusionsschicht, die dem Gasströmungsgang zugewandt angeordnet

ist, in dem das Mischfluid strömt, aus einem wasserabsto-Benden, gasdurchlässigen, leitfähigen Material hergestellt ist, das Reaktionsgas in dem Mischfluid, das in dem Gasströmungsgang strömt, durch die Diffusionsschicht hindurch, die Gasdurchlässigkeit aufweist, und erreicht einen Elektrodenabschnitt, an dem das Reaktionsgas zu der elektrochemischen Reaktion beiträgt, und der erzeugte Gleichstrom wird durch die Diffusionsschicht gesammelt, die Leitfähigkeit aufweist. Andererseits tritt der Wasseranteil in dem Mischfluid, der im Zustand eines Gases vorliegt, d. h. im Zustand von Wasserdampf, durch die Diffusionsschicht in derselben Weise wie das Reaktionsgas hindurch und gelangt an den Elektrodenabschnitt, wo der Wasserdampf zum Befeuchten des Films aus dem festen Polymer-Elektrolyten beiträgt. Da außerdem die Diffusionsschicht ein Absto-Bungsvermögen für Wasser aufweist, tritt der Anteil Wasser in dem Mischfluid, der im flüssigen Zustand vorliegt, nicht durch die Diffusionsschicht hindurch, sondern wird zu der Strom abwärts gelegenen Seite des Gasströmungsgangs geleitet und nach außen abgeleitet, was zu einem erheblichen Anstieg der tolerierbaren Menge an zugeführtem Wasser führt. Daher wird die Diffusionsschicht selbst dann nicht verstopft, wenn die Wassermenge in dem Mischfluid erhöht wird, so daß die charakteristischen Permeations-Eigenschaften für das Reaktionsgas und den Wasserdampf bei geeigneten Werten gehalten werden können. Wie oben beschrieben, schafft die vorliegende Erfindung damit eine Brennstoffzelle mit einem festen Polymer-Elektrolyten, deren Struktur einfach ist und die einen stabilen Betrieb erlaubt, ohne daß eine Verschlechterung der charakteristischen Zellen-Eigenschaften selbst dann hervorgerufen wird, wenn die Strömungsgeschwindigkeit des zugeführten Wassers erhöht

In einer weiteren Ausführungsform der vorliegenden Er-35 findung ist die Diffusionsschicht, die dem Gasströmungsgang zugewandt angeordnet ist, in dem das Mischfluid strömt, aus einer ersten Diffusionsschicht, die ein wasserabstoßendes, für Gas durchlässiges, leitfähiges Material aufweist, das Gasdurchlässigkeit, Leitfähigkeit und Absto-Bungsvermögen für Wasser aufweist, und einer zweiten Diffusionsschicht aufgebaut, die ein gasdurchlässiges, leitfähiges Material umfaßt, das eine höhere Gasdurchlässigkeit als die erste Diffusionsschicht und Leitfähigkeit aufweist, wobei die erste Diffusionsschicht dem Gasströmungsgang benachbart angeordnet ist. Bei einem derartigen Doppelschicht-Aufbau der Diffusionsschicht wird der Elektrodenabschnitt sicher selbst dann gestützt, wenn die erste Diffusionsschicht sehr dünn ist, verglichen mit der oben beschriebenen wasserabstoßenden Diffusionsschicht einer einzelnen Schicht, und ein Verstopfen der Diffusionsschicht mit Wasser wird selbst dann verhindert, wenn die Wassermenge erhöht wird. Außerdem diffundieren deswegen, weil die zweite Diffusionsschicht aus einem gasdurchlässigen, leitfahigen Material hergestellt ist, das eine höhere Gasdurchlässigkeit als die erste Diffusionsschicht aufweist, das Reaktionsgas und Wasserdampf in diese Schicht hinein und treten durch diese noch leichter in den Elektrodenabschnitt durch. Wie oben beschrieben, schafft die vorliegende Erfindung eine bevorzugte Brennstoffzelle mit einem festen Polymer-Elektrolyten, deren Struktur einfach ist und die einen stabilen Betrieb erlaubt, ohne daß eine Verschlechterung der charaktenstischen Zellen-Eigenschaften hervorgerufen wird, selbst wenn die Strömungsgeschwindigkeit des zugeführten Wassers erhöht wird.

In noch einer weiteren Ausführungsform der vorliegenden Erfindung ist die Diffusionsschicht, die dem Gasströmungsgang zugewandt angeordnet ist, in dem nur das Reaktionsgas strömt, aus einer ersten Diffusionsschicht, die ein

wasserabstoßendes, gasdurchlässiges, leitfähiges Material umfaßt, das Gasdurchlässigkeit. Leitfähigkeit und Absto-Bungsvermögen für Wasser aufweist, und einer zweiten Diffüsionsschicht aufgebaut, die ein gasdurchlässiges, leitfähiges Material umfaßt, das eine höhere Gasdurchlässigkeit als die erste Diffusionsschicht und Leitfahigkeit aufweist, wobei die erste Diffusionsschicht auf der Seite der Katalysatorschicht angeordnet ist.

Bei dem obigen Aufbau wird selbst dann; wenn die Menge an Wasser, das in dem Gasströmungsgang auf der 10 Seite einer Elektrode zur Zuleitung des Mischfluids stromt, erhöht wird, die Menge an Wasser, das durch die Diffusionsschicht auf der Seite der anderen Elektrode zur Zuleitung ausschließlich von Gas hindurchtritt, unterdrückt, wodurch ein Verstopfen der Diffusionsschicht verhindert wird, so daß 1 das Reaktionsgas leicht in die Schicht hineindiffundiert und durch die Schicht zu dem Elektrodenabschnitt hindurchtritt. Außerdem wird deswegen, weil ein Verstopfen der Diffusionsschicht mit Wasser auf der Seite der Elektrode zur Zuleitung ausschließlich des Gases ebenfalls verhindert wird, das Diffusionsvermögen des Reaktionsgases nicht verschlechtert. Folglich kann die tolenerbare Strömungsrate von Wasser, das zusammen mit Gas zugeleitet wird, erheblich erhöht werden, und die resultierende Brennstoffzelle ist bevorzugt als Brennstoffzelle mit einem festen Polymer-Elektrolyten, 25 deren Struktur einfach ist und die einen stabilen Betrieb erlaubt, ohne daß eine Verschlechterung der charakteristischen Zellen-Eigenschaften selbst dann hervorgerufen wird, wenn die Strömungsgeschwindigkeit an zugeführtem Wasser erhöht wird.

Das wasserabstoßende, für Gas durchlässige, leitfähige Material, das die wasserabstoßende Diffusionsschicht bildet; die im Rahmen der vorliegenden Erfindung verwendet wird, kann jedes beliebige Material sein, das Abstoßungsvermögen für Wasser, Gasdurchlässigkeit und Leitfähigkeit 35 aufweist. Das Material kann beispielsweise ein faserartiges oder poroses Material sein, das dadurch Permeabilität aufweist und als leitfahiges Material verwendet wird und das mit einem wasserabstoßenden Material behandelt ist, oder kann ein wasserabstoßendes Material mit einem darin dis 40 pergierten leitfähigen Material sein. Bevorzügte Beispiele eines derartigen Materials schließen eine Polytetrafluorethylen-Faserschicht mit darin dispergiertem Kohlenstoff-Pulver, eine porose Carbon-Faser, die mit Polytetrafluorethylen/ behandelt wurde, um sie wasserabstoßend zu machen, und 45 ein poroses Kohlenstoff-Material ein, das mit Polytetrafluorethylen behändelt wurde, um ihm Abstoßungsvermögen für Wasser zu verleihen

Die vorliegende Erfindung wird nun weiter im einzelnen Bezugnahme auf die Fig. 4 bis 14 beschrieben. Die vorliegende Erfindung sollte jedoch nicht als auf diese Ausführungsformen beschränkt aufgefaßt werden.

#### Ausführungsform 1

Fig. 4 ist eine schematische Schnittansicht, die die Struk tur einer einzelnen Zelle in einer ersten Ausführungsform der Brennstoffzelle mit einem festen Polymer-Elektrolyten gemäß der vorliegenden Erfindung zeigt In Fig. 4 sind 60 Komponenten, die dieselbe Funktion oder eine ähnliche Funktion aufweisen wie diejenigen in der Brennstoffzelle des Standes der Technik, wie sie in Fig. 2 gezeigt ist mit denselben Bezügszeichen bezeichnet, und eine ins einzelne gehende Beschreibung dieser Komponenten wird hier weggelässen. Die in Fig. 4 gezeigte Ausführungsform ist dadurch gekennzeichnet, daß auf der Außenfläche sowohl der anodenseitigen Katalysatorschicht 1 als auch der kathoden-

seitigen Katalysatorschicht 2 eine wasserabstoßende Diffusionsschicht 4 anstelle der Diffusionsschicht 5 des Standes der Technik vorgeschen ist, die ein wasserabstoßendes, gasdurchlässiges, leitfähiges Material umfaßt; das Gasdurchlässigkeit, Leitfähigkeit und Abstoßungsvermögen für Wasser aufweist.

Noch spezieller schließt die einzelne Zelle gemäß der vorliegenden Ausführungsform einen Film aus einem Perfluorkohlenstoffsulfonat-Harz (HEMION-Film von der Firma Asahi Glass Co.) einer Dicke von etwa 60 µm als festen Polymer-Elektrolyt-Film 3 ein. Auf beiden Oberflächen dieses Films ist Platinschwarz zur Bildung der Anoden-Katalysatorschicht 1 und der Kathoden-Katalysatorschicht 2 auflammert. Weiter sind auf den Außenflächen der resultierenden Struktur wasserabstoßende Diffusionsschichten 4, 4 vorgesehen, die aus einem wasserabstoßenden, gasdurchlässigen, leitfähigen Material hergestellt sind, das eine Carbon-Faserschicht umfaßt, die mit Polyterrafluorethylen behandelt wurde, um der Schicht Abstößungsvermögen für Wasser zu verleihen. Der Separator 7 besteht aus einem für Gas undurchlässigen Kohlenstoff-Material wie im Stand der Technik.

Fig. 5 ist eine Graphik, die die charakteristischen Eigenschaften der einzelnen Zelle gemäß der vorliegenden Ausführungsform mit denjenigen einer einzelnen Zelle des Standes der Technik vergleicht, worin die Beziehung zwischen der Zellenspannung und der Menge an zugeleitetem Wasser veranschaulicht wird, wenn ein Mischfluid aus Wasserstoff und Wasser den Gasrillen 6a in dem anodenseitigen 30. Separator 7a zugeleitet wird und Luft den kathodenseitigen Gasrillen 6b in dem kathodenseitigen Separator 7b zugeleitet wird und so Elektrizität erzeugt wird. Wie aus Fig. 5 ersichtlich ist, wird kein scharfer Rückgang der Zellenspannung bei der einzelnen Zelle gemäß der vorliegenden Ausführungsform festgestellt, wenn die Menge an zugeleitetem Wasser erhöht wird, während bei der einzelnen Zelle des Standes der Technik die Zellenspannung schaff sinkt, wenn die Menge an zugeleitetem Wasser erhöht wird. Außerdem sind die Mengen an zugeleitetem Wasser bei der Zelle gemäß der vorliegenden Ausführungsform, die eine stabile höhe Spannung liefern; mehr als einhundertmal höher als diejenigen bei der einzelnen Zelle des Standes der Technik. Wenn bei der einzelnen Zelle des Standes der Technik die Menge an zugeleitetem Wasser erhöht wird, werden die Diffusionsschichten, die ein gasdurchlässiges, leitfähiges Material umfassen, oder die Katalysatorschichten mit Wasser befeuchtet, und das Diffusionsvermögen für Reaktionsgas sinkt, was zu einer Verschlechterung der charakteristischen Zellen-Eigenschaften führt. Jedoch ermöglicht in der einzelim Zusammenhang mit den Ausführungsformen und unter 50 nen Zelle gemäß der vorliegenden Ausführungsform die Verwendung der wasserabstoßenden Diffusionsschicht 4, die aus einem wasserabstoßenden, gasdurchlässigen, leitfähigen Malerial besteht, daß Wasserdampf hindurchtritt und in die Schicht eindiffundiert, während das Durchdringen von Wasser durch die Schicht verhindert wird. Daher wird selbst dann, wenn die Menge an zugeführtem Wasser erhöht wird, eine Verschlechterung des Diffusionsvermogens von Reaktionsgas aufgrund eines Befeuchtens mit Wasser unterdrückt, und ein Wasserüberschuß wird nach außen durch die Gasrillen 6a abgeleitet, so daß eine stabile hohe Spannung der Zelle erhalten werden kann.

Im Rähmen der vorliegenden Erfindung unterdrückt trotz der Talsache, daß nur Luft den kathodenseitigen Gasrillen 6b zugeleitet wird, ohne diese mit Wasser zu mischen, die Gegenwart der wasserabstoßenden Diffusionsschicht 4 auch auf der Kathodenseite bei dieser Konstruktion eine Verschlechterung des Diffusionsvermögens für Luft, wenn ein Mischfluid von Luft und Wasser auch den kathodenseitigen Alternativ dazu kann die einzelne Zelle so aufgebaut sein, daß das Mischfluid aus Lift und Wasser der Kathodenseite zugeleitet wird und nur Wasserstoff der Anodenseite zugeleitet wird.

#### Ausführungsform 2

Fig. 6 ist eine schematische Schnittansicht, die die Struktur einer einzelnen Zelle gemäß einer zweiten Ausführungsform der Brennstoffzelle mit einem festen Polymer-Elektrolyten gemäß der vorliegenden Erfindung zeigt. Der Aufbau unterscheidet sich von demjenigen von Ausführungsform 1, wie er in Fig. 4 gezeigt ist, darin, daß die Diffusionsschieht 5, wie sie in einer einzelnen Zelle des Standes der Technik verwendet wird, anstelle der wasserabstoßenden Diffusionsschicht 4 auf der Kathodenseite angeordnet wird. Mit diesem Aufbau wurde ein Stromerzeugungs-Test durchgeführt, indem man ein Mischfluid aus Wasserstoff und Wasser den Gasrillen 6a in dem anodenseitigen Separator 7a zuleitete 20 und Lust den kathodenseitigen Gasrillen 6b in dem kathodenseitigen Separator 7b zuleitete. Als Ergebnis wurde beobachtet, daß die erhaltenen charakteristischen Eigenschaften der Stromerzeugung nahezu dieselben waren wie diejenigen bei Ausführungsform 1, wie sie in Fig. 5 gezeigt sind. 25 Dies kann dem Einbau der wasserabstoßenden Diffusionsschicht 4 auf der Anodenseite zugeschrieben werden, auf der das Mischfluid aus Wasserstoff und Wasser zugeleitet wird. Diese verhinderte ein Verstopfen der Diffusionsschicht aufgrund eines Befeuchtens mit Wasser, so daß das 30 Diffusionsvermögen für das Reaktionsgas bei geeigneten Werten gehalten werden konnte.

# Ausführungsform 3

Fig. 7 ist eine schematische Schnittansicht, die die Struktur einer einzelnen Zelle gemäß einer dritten Ausführungsform der Brennstoffzelle mit einem festen Polymer-Elektrolyten gemäß der vorliegenden Erfindung zeigt. Was diesen Aufbau kennzeichnet, ist die Tatsache, daß die anodensei- 40 tige Diffusionsschicht aus zwei Schichten aufgebaut ist, d. h. einer wasserabstoßenden Diffusionsschicht 4A, die aus einem wasserabstoßenden, gasdurchlässigen, leitfähigen Material hergestellt ist, das eine in Form eines dünnen Films ausgebildete Polytetrafluorethylen-Faserschicht mit darin 45 dispergiertem Kohlenstoff-Pulver umfaßt, und der Diffusionsschicht 5, die aus einem gasdurchlässigen, leitfähigen Material hergestellt ist, das Carbon-Papier umfaßt, wie es in der einzelnen Zelle des Standes der Technik verwendet wird, wobei ein Mischfluid aus Wasserstoff und Wasser der 50 Anodenseite zugeleitet wird, und Luft der Kathodenseite zugeleitet wird.

Bei diesem Aufbau unterdrückt - wie in den Ausführungsformen 1 und 2 - die wasserabstoßende Diffusionsschicht 4A ein Befeuchten der Diffusionsschicht und/oder 55 des festen Polymer-Elektrolyt-Films mit dem Wasser in dem Mischfluid, so daß die Zelle ohne Verschlechterung des Diffusionsvermögens selbst dann verwendet werden kann, wenn die Menge an zugeleitetem Wasser erhöht wird. Au-Berdem ermöglicht es die Schaffung der Diffusionsschicht 5 mit gutem Diffusionsvermögen in Nachbarschaft zu der wasserabstoßenden Diffusionsschicht 4A, daß Wasserstoff oder Wasserdampt, die von der Gasnille 6a in dem Separator 7a zu der wasserabstoßenden Diffusionsschicht 4A diffundiert sind, wenn sie durch die Diffusionsschicht 5 mit gutem 65 Diffundiervermögen hindurchdiffundieren, effizient auch in Richtung entlang der Hauptoberfläche der Diffusionsschicht 5 zu diffundieren, d. h. in den Richtungen aufwärts und abwärts, verglichen mit der Papieroberfläche in Fig. 7, sowie in einer Richtung senkrecht zur Papieroberfläche. Dementsprechend erreichen der Wasserstoff oder der Wasserdampf die Anoden-Katalysatorschicht 1, wobei sie sich einheitlich in der Diffusionsschicht 5 verteilen, was zu einer verbesserten Einheitlichkeit innerhalb der Oberfläche unter Erhalt einer stabilen hohen Spannung führt.

## Ausführungsform 4

Fig. 8 ist eine schematische Schnittansicht, die die Struktur einer einzelnen Zelle gemäß einer vierten Ausführungsform der Brennstoffzelle mit einem festen Polymer-Elektrolyten gemäß der vorliegenden Erfindung zeigt. Was diesen Aufbau kennzeichnet, ist die Tatsache, daß die anodenseitige Diffusionsschicht, der ein Mischfluid aus Wasserstoff und Wasser zugeleitet wird, aus zwei Schichten aufgebaut ist, d. h. einer wasserabstoßenden Diffusionsschicht 4A, die aus einem wasserabstoßenden, gasdurchlässigen, leitfähigen Material hergestellt ist, und der Diffusionsschicht 5, die aus demselben gasdurchlässigen, leitfähigen Material hergestellt ist, wie in der obigen Ausführungsform 3, und weiter die Tatsache, daß eine weitere wasserabstoßende Diffusionsschicht 4A, die aus einem wasserabstoßenden, gasdurchlässigen, leitfähigen Material hergestellt ist, auch zwischen der kathodenseitigen Diffusionsschicht 5, der nur Luft zugeführt wird, und der Kathoden-Katalysatorschicht 2 angeordnet ist. Folglich ermöglicht dieser Aufbau, wie derjenige, der in Ausführungsform 3 beschrieben wurde, daß Wasserstoff in passenden Konzentrationsmengen der Katalysatorschicht selbst dann zugeleitet wird, wenn die Menge an Wasser, das der Anodenseite zugeleitet wird, erhöht wird. Dies führt zu einheitlichen charakteristischen Zellen-Eigenschaften, und die Schaffung der wasserabstoßenden Diffusionsschicht 4A auch zwischen der Kathoden-Katalysatorschicht 2 und der kathodenseitigen Diffusionsschicht 5 unterdrückt das Verstopfen der kathodenseitigen Diffusionsschicht mit Wasser, wodurch ein stabiler Betrieb der Zelle ermöglicht wird.

# Ausführungsform 5

Fig. 9 ist eine schematische Schnittansicht, die die Struktur einer einzelnen Zelle gemäß einer fünften Ausführungsform der Brennstoffzelle mit einem festen Polymer-Elektrolyten gemäß der vorliegenden Erfindung zeigt. Dieser Aufbau unterscheidet sich von demjenigen der einzelnen Zelle, die in Ausführungsform 4 beschrieben wurde hinsichtlich der Position der wasserabstoßenden Diffusionsschicht 4A, die auf der Kathodenseite vorgesehen ist. Noch spezieller ist in der Ausführungsform 4 die Diffusionsschicht 4A zwischen der Diffusionsschicht 5 und der Kathoden-Katalysatorschicht 2 angeordnet, im Gegensatz zur vorliegenden Ausführungsform, in der die Diffusionsschicht 4A zwischen der Diffusionsschicht 5 und dem Separator 7a oder 7b angeordnet ist. Auch in der vorliegenden Ausführungsform (wie in der oben beschriebenen Ausführungsform 4) unterdrückt die wasserabstoßende Diffusionsschicht 4A das Verstopfen der kathodenseitigen Diffusionsschicht mit Wasser, wodurch für überlegene charakteristische Zellen-Eigenschaften gesorgt wird. Außerdem kann dieser Aufbau auch bei der Zufuhr eines Mischfluids aus Wasserstoff und Wasser zur Anodenseite und eines Mischfluids aus Luft und Wasser zur Kathodenseite verwendet werden. Darüber hinaus kann dieser Aufbau auch bei Zufuhr nur von Wasserstoff zur Anodenseite und eines Mischfluids aus Luft und Wasser zur Kathodenseite verwendet werden.

# Ausführungsform 6

Fig. 10 ist eine schematische Schnitlansicht, die die Struktur einer einzelnen Zelle gemäß einer sechsten Ausführungsform der Brennstoffzelle mit einem festen Polymer-Elektrolyten gemäß der vorliegenden Erfindung zeigt. Die vorliegende Ausführungsform betrifft ein Beispiel des Aufbaus einer einzelnen Zelle, bei dem ein Mischfluid aus Luft und Wasser der Kathodenseite zugeleitet wird. Was diesen Aufbau kennzeichnet, ist die Tatsache, daß als kathodenseit tige Diffusionsschicht, des Aufbaus gemäß dem Stand der Technik, wie er in Fig. 2 gezeigt wird, eine wasserabstoßende Diffusionsschicht 4B verwendet wird, die aus einem wasserabstoßenden, gasdurchlassigen, leitfahigen Material hergestellt ist, das ein poroses Kohlenstoff Material umfaßt, das mit Polytetraffuorefhylen behandelt wurde, um ihm Wasserabstoßungsvermögen zu verleihen.

Auch im Rähmen der vorliegenden Ausführungsform wird keine scharfe Verschlechterung der charakteristischen Zellen-Eigenschaften bemerkt, selbst wenn die Menge an zugeleitetem Wasser erhöht wird, so daß eine stabile hohe Spannung erhalten werden kann.

#### Ausführungsform 7

Fig. 11 ist eine schematische Schnittansicht, die die Strüktur einer einzelnen Zelle gemäß einer siebten Ausführungsform der Brennstoffzelle mit einem festen Polymer-Elektrolyten gemäß der vorliegenden Erfindung zeigt. Dieser Aufban unterscheidet sieh von demjenigen der einzelnen 30 Zelle, die in Ausführungsform 6 beschrieben wurde, dahingehend, daß eine wasserabstoßende Diffusionsschicht 4A, die aus einem wasserabstoßenden, gasdurchlässigen, leitfälligen Material hergestellt ist, das eine Polytetrafluorethylen-Faserschicht umfäßt, weiter zwischen der anodenseitigen Diffusionsschicht 5 und dem Separator 7a vorgesehen wird.

Auch im Rahmen der vorliegenden Ausführungsform wird selbst dann keine scharfe Verschlechterung der charakteristischen Zellen-Eigenschaften bemerkt, wenn die Menge 40 an Wasser, das zusammen mit Luft zugeführt wird, erhöht wird, so daß eine stabile höhe Spannung erhalten werden kann Weiter unterdrückt die wasserabstoßende Diffusionsschicht 4A das Verstopfen der anodenseitigen Diffusionsschicht mit Wasser, wodurch stabile charakteristische Zel-45 len-Eigenschaften geschäften werden. Darüber hinaus kann ein Mischfluid aus Wasserstoff und Wasser der Anodenseite zugeleitet werden.

#### Ausführungsform 8

Fig. 12 ist eine schematische Schnittansicht, die die Struktur einer einzelnen Zelle gemäß einer achten Ausführungsform der Brennstöffzelle mit einem festen Polymer. Elektrolyten gemäß der vorliegenden Erfindung zeigt. Un. 55 terschiede zwischen dem vörliegenden Aufbau und demjenigen; der in Ausführungsform 7. beschnieben wurde, bestehen in der Anordnung der wasserabstoßenden Diffusionsschicht 4A und der Diffusionsschicht 5 auf der Anodenseite. Genauer gesagt ist in der vorliegenden Ausführungsform die 60 wasserabstoßende. Schicht 4A zwischen der Diffusionsschicht 5 und der Anoden Katalysatorschicht 1 angeordnet.

Auch bei der vorliegenden Ausführungsform wird keine schärfe Verschlechterung der charakteristischen Zellen-Eigenschäften selbst dann bemerkt, wenn die Menge an Was- 65 ser das zusammen mit Luft zugeführt wird, erhöht wird, und die wasserabstoßende Diffusionsschicht 4A unterdrückt das Verstopfen der anodenseitigen Diffusionsschicht mit Was-

# Ausführungsform 9

ser, wodurch für stabile charakteristische Zellen Eigen

Fig. 13 ist eine schematische Schnittansicht, die die Struktur einer einzelnen Zelle gemäß einer neunten Ausführungsform der Brennstoffzelle mit einem festen Polymer-Elektrolyten gemäß der vorhegenden Erfindung zeigt. In diesem Aufbau werden zwei wasserabstoßende Diffusionsschichten vorgesehen. Wie aus Fig. 13 ersichtlich ist, sind eine wasserabstoßende Diffusionsschicht 4 die eine Carbon-Paserschicht umfaßt, die mit Polytetraffvorethylen behandelt wurde, um ihr Wasserabstoßungsvermögen zu verleihen, und eine Diffusionsschieht 5, die Carbon-Papier umfaßt, zwischen dem Separator 7b auf der Kathodenseite, der mit einem Mischfluid aus Luft und Wasser versorgt wird, und der Kathoden-Katalysatorschicht 2 eingebaut. Andererseits sind die Diffusionsschicht 5 und die wasserabstoßende Diffusionsschicht 4 zwischen dem Separator 7a auf der Anodenseite, die mit Wasserstoff versorgt wird, und der Anoden-Katalysatorschicht Leingebaut.

Auch in dem vorhegenden Aufbau – wie in den Ausführungsformen 6 bis 8.—wird kein schärfe Verschlechterung der charakteristischen Zellen Eigenschaften selbst dann bei merkt, wenn die Menge an zugeführtem Wasser erhöht wird, und die wasserabstoßende Diffusionsschicht 4 unterdrückt das Verstopfen der anodenseitigen Diffusionsschicht mit Wasser, wodurch für stabile charakteristische Zellen-Eigenschaften gesorgt wird.

#### Ausführungsform 10

Fig. 14 ist eine schematische Schnittansicht, die die Strukturiener einzelnen Zelle gemäß einer zehnten Ausführungsform der Brennstoffzelle mit einem festen Polymer-Elektrolyten gemäß der vorliegenden Erfindung zeigt. Die einzelne Zelle gemäß dieser Ausführungsform ist so aufgebaut, daß in dem Aufbau der einzelnen Zelle gemäß dem Stand der Technik, wie er in Fig. 2 gezeigt ist, eine wasserabstoßende Diffusionsschicht 4, die dieselbe ist wie die wasserabstoßende Diffusionsschicht 4, die in Ausführungsform 9 beschnieben wurde, weiter zwischen dem kathodenseitigen Separator 7b und der Diffusionsschicht 5 eingebaut wurde.

Auch bei dem vorliegenden Aufbau wird keine scharfe Verschlechterung der charakteristischen Zellen-Eigenschaften selbst dann bemerkt, wenn die Menge an Wasser, das zusammen mit Luft der Kathodenseite zugeleitet wird, erhöht 50 wird, so daß stabite charakteristische Zellen-Eigenschaften erreicht werden

In den oben beschriebenen Ausführungsformen werden verschiedene wasserabstoßende, gasdurchlassige, leitfähige Materialien in verschiedenen Ausführungsformen verwendet. Noch spezieller wird in den Ausführungsformen 1, 2, 9 und 10 als wasserabstoßendes, gasdurchlassiges, leitfähiges Material zur Ausbildung der wasserabstoßenden Diffusionsschicht eine Carbon-Faserschicht verwendet, die einer Behandlung mit Tetrafluorethylen unterworfen wurde; um sie wasserabstoßend zu machen; eine in Form eines dünnen Films vorliegende Polytetrafluorethylen Faserschicht mit darin dispergiertem Kohlenstoff-Pulver wird in den Ausführungsformen 3, 4, 5, 47 jund 8 verwendet; und ein poroses Kohlenstoff-Material, das einer Behandlung mit Polytetrafluorethylen unterworfen wurde um es wasserabstoßend zu machen, wird in den Ausführungsformen 6,7 und 8 verwender: Diese Materialien sind jedoch nicht speziell für den Aufbau der einzelnen Zellen der jeweiligen Ausführungs-

formen, sondern können als wasserabstoßendes, gasdurchlässiges, leitfähiges Material zur Ausbildung der wasserabstoßenden Diffusionsschicht angewendet werden, wie sie in anderen Ausführungsformen verwendet wird.

Im Rahmen der vorliegenden Erfindung kann das wasserabstoßende, gasdurchlässige, leitfähige Material beispielsweise nach dem folgenden Verfahren hergestellt werden: Als erstes werden Kohlenstoff-Pulver (Hersteller: Firma Kojundo Kagaku Co., Ltd.), Polytetrafluorethylen-Pulver (MP1300; Handelsname für ein Produkt der Firma Mitsui DuPont Fluorochemical Co., Ltd.) und Glycerin als Lösungsmittel im Gewichtsverhältnis 2:1:7 gemischt und gut in einer Kugelmühle für die Zeit von 2 h miteinander vermischt, so daß das Kohlenstoff-Pulver und das Polytetrafluorethylen-Pulver einheitlich in dem Lösungsmittel unter 15 Bildung einer Time dispergiert sind. Anschließend wird die Tinte beschichtungsmäßig auf Kohlenstoff-Papier bzw. Carbon-Papier (TGP-H-60; Handelsname für ein Produkt der Firma Toray Ltd.) mittels Siebdruck aufgebracht und in einem Ofen I h lang auf 350°C erhitzt, um ein wasserabsto- 20 ßendes, gasdurchlässiges, leitfähiges Material herzustellen. Bei diesem Herstellungsverfahren ist die Dicke der beschichtungsmäßig aufgebrachten Schicht, die durch Auftragen der Tinte gebildet wird, vorzugsweise 200 um oder weniger. Wenn die Beschichtungsschicht zu dick ist, wird das 25 Gasdiffusionsvermögen verschlechtert, was zu schlechteren charakteristischen Zellen-Eigenschaften führt.

Das Herstellungsverfahren zur Herstellung des wasserabstoßenden, gasdurchlässigen, leitfähigen Materials ist nur ein Beispiel, und die vorliegende Erfindung ist nicht darauf 30 beschränkt. Beispielsweise kann eine Polytetrafluorethylen-Dispersion (30-J. Handelsname für ein Produkt der Firma Mitsui DuPont Fluorochemical Co., Ltd.) anstelle des Polytetrafluorethylen-Pulvers verwendet werden. Weiter kann anstelle einer Kugelmühle ein mit Ultraschall arbeitendes 35 Dispergiergerät zum Mischen verwendet werden. Das oben beschriebene Kohlenstoff-Papier bzw. Carbon-Papier kann durch ein Kohlenstoff-Papier bzw. Carbon-Papier ersetzt werden, das einer Behandlung unterzogen wurde, um es wasserabstoßend zu machen, oder kann durch ein Carbon-40 Tuch ersetzt werden (PANEX30; Handelsname für ein Produkt der Firma ZolTEK Co., Ltd.).

Die vorliegende Erfindung wurde im einzelnen unter Bezug auf bevorzugte Ausführungsformen beschrieben. Aus der vorstehenden Beschreibung und den Ausführungsformen ist Fachleuten in diesem technischen Bereich ersichtlich, daß Änderungen und Modifikationen durchgeführt werden können, ohne von der Erfindung in ihren breiteren Aspekten abzuweichen. Es ist daher beabsichtigt, daß die nachfolgenden Patentansprüche alle derartigen Änderungen 50 und Modifikationen umfassen und als in den Bereich der vorliegenden Erfindung fallend ansehen.

# Patentansprüche

1. Brennstoffzelle mit einem festen Polymer-Elektrolyten, umfassend einen Stapel aus einzelnen Zellen (20), wobei jede einzelne Zelle (20) umfaßt

- einen Film (3) aus einem festen Polymer-Elektrolyten, der Hauptoberflächen aufweist;

- eine Anoden-Katalysatorschicht (1) und eine Kathoden-Katalysatorschicht (2). die an die jeweiligen Hauptoberflächen des Films (3) eines festen Polymer-Elektrolyten gebunden sind und so eine Anode bzw. eine Kathode ausbilden;
- für Gas durchlässige und leitfähige Diffusionsschichten (4, 4), die auf den jeweiligen Außenflächen der Katalysatorschichten (1, 2) angeordnet

sind, die an die Hauptoberflächen des Films (3) aus einem festen Polymer-Elektrolyten gebunden sind;

einen ersten und einen zweiten für Gas undurchlässigen Separator (7a, 7b), die auf den jeweiligen Außenflächen der Diffusionsschichten (4, 4) angeordnet sind, wobei der erste Separator (7a) und der zweite Separator (7b) mit ersten und zweiten Gasströmungsgängen (6a, 6b) versehen sind;

der Seite der Anode vorgesehen ist, dafür vorgesehen ist, daß darin ein Brennstoffgas strömt, und der zweite Gasströmungsgang (6b), der auf der Seite der Kathode vorgesehen ist, dafür vorgesehen ist, daß darin ein Oxidationsmittelgas strömt, so daß elektrische Energie durch eine elektrochemische Reaktion gebildet wird, wobei wenigstens eines der Gase Brennstoffgas und Oxidationsmittelgas als Mischfluid mit Wasser in dem jeweiligen Gasströmungsgang (6a, 6b) strömen; und – worm wenigstens eine der gasdurchlässigen

- Wonn wenigstens eine der gasdurchlässigen und leitfähigen Diffusionsschichten (4, 4) ein wasserabstoßendes, für Gas durchlässiges, leitfähiges Material umfaßt, das Gasdurchlässigkeit, Leitfähigkeit und Wasserabstoßungsvermögen aufweist.

2. Brennstoffzelle mit einem festen Polymer-Elektrolyten nach Anspruch 1, worin die wenigstens eine Diffusionsschicht (4, 4), die ein wasserabstoßendes, gasdurchlässiges, leitfähiges Material umfaßt, das Gasdurchlässigkeit, Leitfähigkeit und Wasserabstoßungsvermögen aufweist, eine Schicht ist, die zu dem Gasströmungsgang zeigt, in dem das Mischfluid strömt.

3. Brennstoffzelle mit einem festen Polymer-Elektrolyten nach Anspruch 2, worin die Diffusionsschicht
(4), die zu dem Gasströmungsgang zeigt, in dem das
Mischfluid strömt, eine erste Diffusionsschicht, die ein
wasserabstoßendes, gasdurchlässigkeit, Leitfähiges Material umfaßt, das Gasdurchlässigkeit, Leitfähigkeit
und Abstoßungsvermögen für Wasser aufweist, und
eine zweite Diffusionsschicht umfaßt, die ein gasdurchlässiges, leitfähiges Material aufweist, das eine
höhere Gasdurchlässigkeit als die erste Diffusionisschicht und Leitfähigkeit aufweist, wobei die erste Diffusionsschicht dem Gasströmungsgang benachbart angeordnet ist, in dem das Mischfluid strömt.

4. Brennstoffzelle mit einem festen Polymer-Elektrolyten nach Anspruch 1, worin die wenigstens eine Diffusionsschicht (4, 4), die ein wasserabstoßendes, gasdurchlässiges, leitfähiges Material umfaßt, das Gasdurchlässigkeit, Leitfähigkeit und Wasserabstoßungsvermögen aufweist, eine Schicht ist, die zu dem Gasströmungsgang zeigt, in dem das Gas alleine strömt.

- Jesus Jesus
- .6. Brennstoffzelle mit einem festen Polymer-Elektro-

lyten nach einem der Ansprüche 1 bis 5, worin das was serabstoßender (gasslurchlässige, leitfahige Material eine Polytetrafluor ethylen-Faserschicht mit darin dispergiertem Köhlenstöff-Pulver umfaßt.

7 Brennstoffzelle mit einem festen Polymer-Elektro- 5 lyten nach einem der Ansprüche 1 bis 5, worin das wasserabstoßende, gasdurchlässige; leitfahige Material ein Material umfaßt, das gewählt ist aus der Gruppe, die besteht aus einer Carbon-Faserschicht, die mit Polytetrafluorethylen behandelt ist und einem porosen Koh- 10 lenstoff-Material, das mit Polytetrafluorethylen behandelt ist.

# Hierzu 14 Séite(n) Zeichnungen

20

25∵

30

45

50

. .

- Leerseite -

FIG.,1

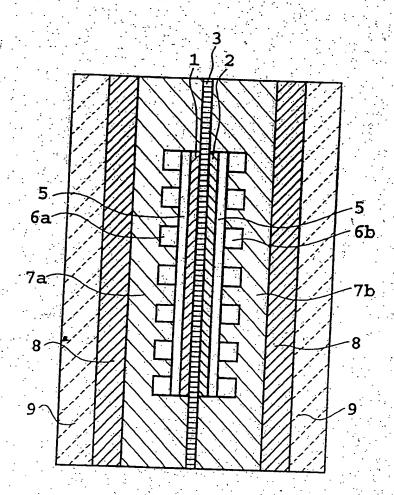
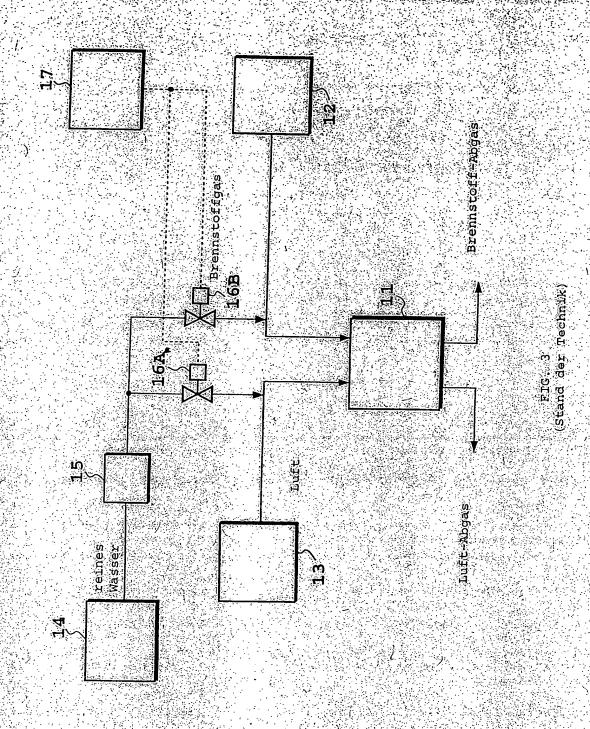


FIG. 2 (Stand der Technik)



BEST AVAILABLE COPY

H 01 M 8/10 4. März 1999

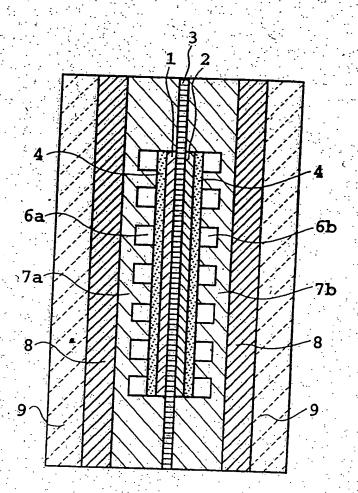


FIG.4

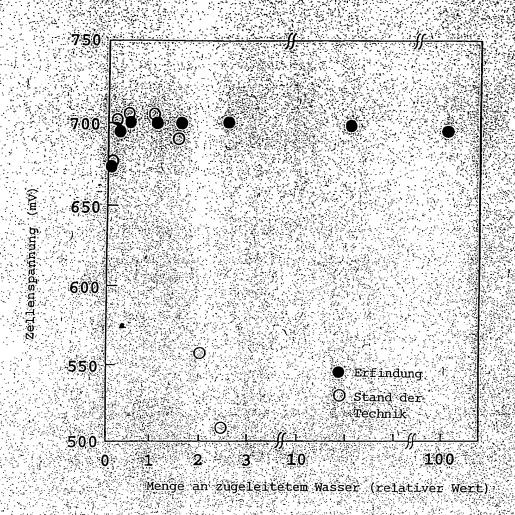


FIG.5

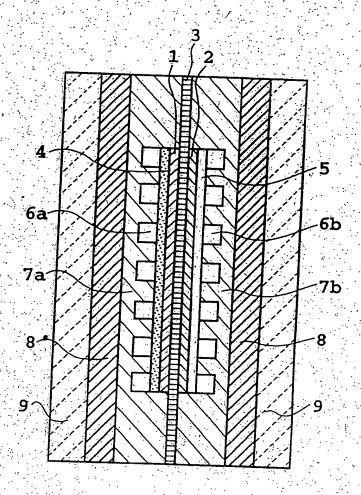


FIG.6

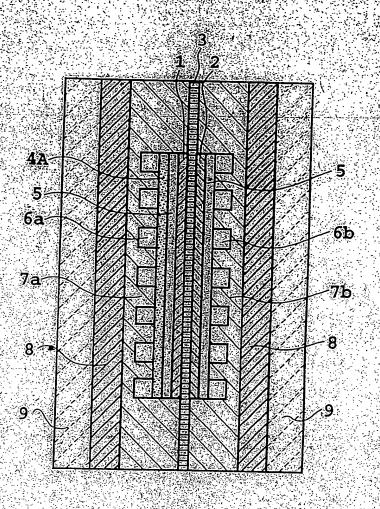


FIG.7

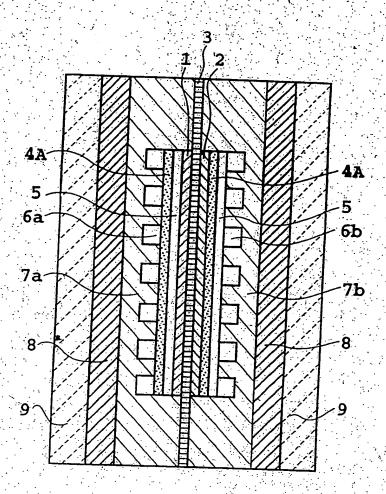


FIG.8

ALLABLE COPY

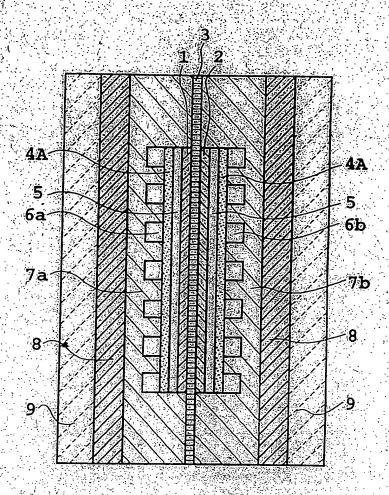


FIG.9

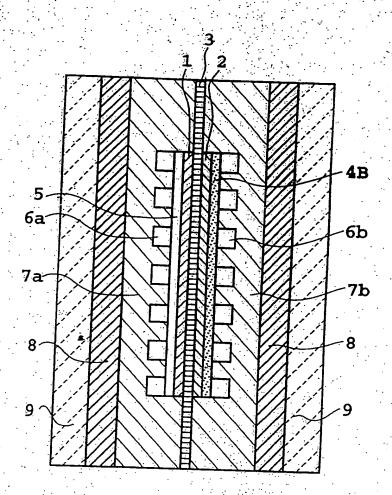


FIG. 10

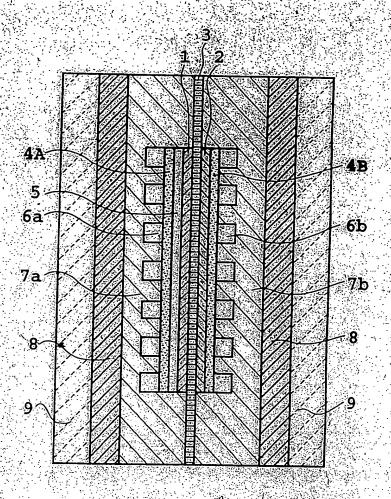


FIG.11

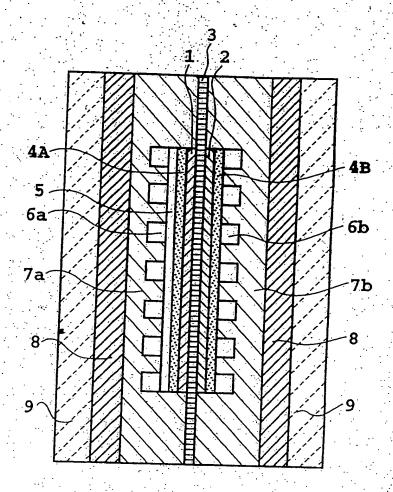


FIG. 12

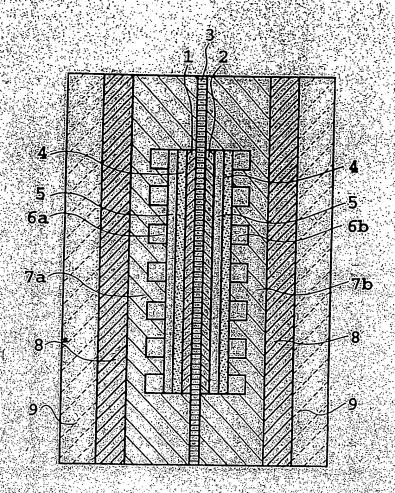


FIG.13

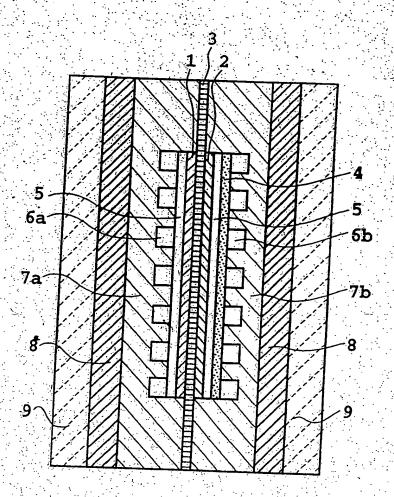


FIG. 14